学 位 論 文 題 名

Study of antiferromagnetism in heavy fermion compound
(Pt_{1-x}Pd_x)₃ by low temperature heat capacity measurement(低温比熱測定による重い電子系 U(Pt_{1-x}Pd_x)₃の反強磁性に関する研究)

学位論文内容の要旨

重い電子系超伝導物質 UPt₃ は、超伝導相が温度と外部磁場に対する多重相図を有し、その特異な超伝導の起源を明らかにするために多くの研究者によって精力的に研究が行われている。等方的な超伝導ギャップをもつ典型的な BCS 超伝導体の熱力学的特性が指数関数的な温度依存性を示すのに対し、UPt₃ の超伝導状態における比熱や熱伝導は温度のべき乗に比例し、超伝導ギャップに異方性が存在することを示唆している。また、常伝導状態における比熱の upturn で示される強磁性的なスピン揺らぎの存在が示唆される一方で、微小な磁気モーメント (0.02 μ_B) をもつ反強磁性秩序と超伝導状態との共存が中性子散乱の実験によって観測され、対形成の引力や多重相図の起源と密接に関わるものとして注目されているが、帯磁率、比熱、NMR などの実験手段では長距離秩序の存在は確認されていない。これに対し、UPt₃ の Pt サイトを Pd で、あるいは U サイトを Th 等で置換することにより超伝導状態は急速に消失し、大きな磁気モーメントをもつ反強磁性秩序が出現する。U(Pt_{1-x}Pd_x)₃ の反強磁性秩序の磁気構造は UPt₃ の小さな磁気モーメントの反強磁性のそれと同じであり、磁気モーメントの差異にもかかわらず転移温度はほぼ同程度である。元素置換 UPt₃ 系において現れる反強磁性秩序の性質とその起源、UPt₃ における小さな磁気モーメントを持った反強磁性との関係については、発見から 10 年以上が経過した今日においても未だ解決されていない。

本研究では、U(Pt_{1-x}Pd_x)₃ のスピンの揺らぎと磁気秩序についての知見を得ることを目的として、Pd 濃度を微細に制御した試料 (Pd 濃度 2%、4%、5%、6%、8%、9%、及び 10%) について零磁場および 12T までの高磁場中において低温比熱測定を行った。この重い電子系では比熱の低温における upturn ($T^3 \ln T$ 項) から強磁性的なスピン揺らぎが存在が示唆されており、高磁場中比熱測定により系の磁気相関の変化を探り、重い電子系超伝導

物質における特異な磁氣的性質を解明することを目的とした。本論文では、上記に要約した研究の背景と目的を第1章において述べた。第2章では実験方法を述べ、第3章では実験結果をまとめ、第4章で得られた成果に対する議論を展開した。以下にこれを要約する。

Pd 濃度 $x=0.02\sim 0.08$ の試料において磁気転移に伴う比熱の異常が観測された。しかしながら磁気転移に伴うエントピーの変化は小さく、磁気転移温度以下の磁気秩序状態においても電子比熱係数の値は大きな値 ($\gamma_{x=0.05} \sim 490\text{mJ}/\text{K}^2\text{mol}$) を持っており重い電子状態にあることが示された。このことは、低温磁気秩序相においてもスピンの自由度が残っていることを示している。

低温では UPt_3 の比熱と同様に C/T の温度依存性に upturn が観測された。この温度依存性は UPt_3 で議論されているようなスピン揺らぎの寄与による $T^3\ln(T/T_0)$ 項としては説明できず、低温において $\log T$ の温度依存性であることが明らかになった。 $\log T$ の温度依存性が最も顕著に観測された Pd 濃度 10% の試料では測定範囲の温度において磁気転移が観測されていないことから、 $T \rightarrow 0$ での磁気転移への近接によって $\log T$ 項が説明できるように見える。しかしながら、明確な磁気転移が観測されている試料における磁気秩序状態においても $\log T$ 項は観測されており、上記の $T \rightarrow 0$ での磁気転移による非フェルミ液体論的振る舞いではこれを説明することは出来ない。 $\text{U}_{1-x}\text{Zr}_x\text{Pt}_3$ および $\text{U}_{1-x}\text{Hf}_x\text{Pt}_3$ においては置換元素の増加によって $T^3\ln(T/T_0)$ 項にとってかわり、 $0.2 \sim 20\text{K}$ の広範囲において比熱に $\log T$ 項が出現することが観測され、 UPt_3 系において 2 チャンネル近藤効果が出現する可能性が議論されており、 $\text{U}(\text{Pt}_{1-x}\text{Pd}_x)_3$ における $\log T$ 項の起源は今後明らかにすべき重要な問題点であることを指摘した。10mK に至る極低温で重い電子状態の比熱の振舞を調べることの重要性を提示した。

さらに、磁気転移温度は外部磁場の印加により磁場の 2 乗 (H^2) に比例して低下することが観測された。一方、 c 軸配向試料に対する磁場効果の測定からは、 c 軸方向と面内方向では、磁気転移温度の低下に大きな違いがみられ、 UPt_3 において観測されている大きな磁気異方性は、Pd 置換によって出現した大きな磁気モーメントをもつ反強磁性秩序においても存在していることが明らかとなった。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 熊 谷 健 一
副 査 教 授 大 川 房 義
副 査 教 授 榊 原 俊 郎
副 査 講 師 網 塚 浩

学位論文題名

Study of antiferromagnetism in heavy fermion compound (Pt_{1-x}Pd_x)₃ by low temperature heat capacity measurement

(低温比熱測定による重い電子系 U(Pt_{1-x}Pd_x)₃の反強磁性に関する研究)

重い電子系超伝導物質 UPt₃は、超伝導相が温度と外部磁場に対する多重相図を有し、また、超伝導ギャップに異方性が存在するなどその特異な超伝導の起源に興味を持たれている。微小な磁気モーメント(0.02 μ_B)をもつ反強磁性秩序と超伝導との共存が中性子散乱の実験によって観測され、対形成の引力や超伝導多重相の起源と密接に関わるものとして注目されているが、他の実験手段では長距離秩序の存在は確認されていない。一方、UPt₃の Pt サイトを Pd で、あるいは U サイトを他元素で置換することにより超伝導状態は急速に消失し、大きな磁気モーメントをもつ反強磁性秩序が出現することが知られている。申請者は、U(Pt_{1-x}Pd_x)₃における反強磁性秩序とスピンの揺らぎに関する知見を得ることにより、重い電子系に現れる特異な磁気転移と磁気状態を明らかにすることを目的として、12T までの高磁場下での極低温比熱測定を行った。

本論文では、研究の背景と目的を第 1 章において述べ、第 2 章では実験方法を述べている。Pd 濃度を微細に制御した作製した試料が c 軸配向しており、磁場依存性における異方性の解析が可能であることを指摘するとともに、零磁場および 12T までの高磁場中において 1 K 以下の低温比熱測定をおこなう測定装置の開発について述べた。

第 3 章で実験結果をまとめ、第 4 章で得られた成果に対する議論を展開した。本研究において磁気転移に伴う比熱の異常が観測されるが、磁気転移に伴うエントピーの変化は小さい。磁気転移温度以下の磁気秩序状態においても電子比熱係数は大きな値(~500 mJ/K²mol)を持つ重い電子状態にあることが示され、低温において logT の温度依存性で

増大することを実験的に明らかにした。このことは、低温磁気秩序相においてもスピンの自由度が残っていることを示しているが、反強磁性状態において現れる $\log T$ 項の温度依存性の起源が、2チャンネル近藤効果や $T \rightarrow 0$ での磁気転移への近接によって出現する非フェルミ液体論的振る舞いではこれを説明することは出来ず、反強磁性揺らぎを取り入れた S C R 理論で解析可能であることを示唆した。

一方、c 軸配向試料に対する磁場効果の測定から、c 軸方向と面内方向では、磁気転移温度の低下に大きな違いがみられ、 $U\text{Pt}_3$ において観測されている大きな磁気異方性は、Pd 置換によって出現した大きな磁気モーメントをもつ反強磁性秩序においても存在する。磁気転移温度は外部磁場の印加により磁場の 2 乗(H^2)に比例して低下し、その変化率は帯磁率とスケールすることを明らかにした。

また、申請者は、反強磁性スピン揺らぎによる大きな比熱である低温で求められる $\log$ 項の差し引くことにより転移に伴う比熱を解析し、その温度依存性からスピン励起にギャップが開いていることを示した。このことから、 $U(\text{Pt}_{1-x}\text{Pd}_x)_3$ において出現する磁気秩序がスピン密度波(SDW)による磁気転移であることを示し、特定の Pd 濃度におけるフェルミ面のネスティング効果による可能性を議論した。

これを要するに、申請者は、特異な重い電子系において出現する磁気秩序の特性を明らかにし、磁気秩序状態における反強磁性スピンの揺らぎの効果の重要性を指摘しその学術的評価は高く、強相関電子系の磁性の研究に貢献することが極めて大である。

よって審査員一同は本論文の申請者鈴木俊彦は北海道大学博士(理学)の学位を受けるに十分な資格があるものと認定した。